

**ULTRAVIOLET-CURABLE COMPOSITION AND OPTICAL DISC****Publication number:** JP2002069269**Publication date:** 2002-03-08**Inventor:** ITO DAISUKE**Applicant:** DAINIPPON INK & CHEMICALS**Classification:**

**- international:** C08L63/00; C08G59/68; C08G65/18; C08K5/00;  
C08K5/13; C08L71/02; C09J129/10; C09J163/00;  
C09J171/02; C09J201/00; G11B7/24; G11B7/26;  
C08L63/00; C08G59/00; C08G65/00; C08K5/00;  
C08L71/00; C09J129/00; C09J163/00; C09J171/00;  
C09J201/00; G11B7/24; G11B7/26; (IPC1-7):  
C08L63/00; C08G59/68; C08G65/18; C08K5/00;  
C08K5/13; C08L71/02; C09J129/10; C09J163/00;  
C09J171/02; C09J201/00; G11B7/24; G11B7/26

**- European:****Application number:** JP20000258930 20000829**Priority number(s):** JP20000258930 20000829

Report a data error here

**Abstract of JP2002069269**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an ultraviolet-curable cation polymerizable composition which shows variation characteristics even under a high temperature of 40-60 deg.C and permits long-term preservation. **SOLUTION:** The ultraviolet curing composition comprises a cationically polymerizable compound (A), an iodonium-based photocationic polymerization initiator (B), and a radical inhibitor or an antioxidant (C).

---

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-69269

(P2002-69269A)

(43) 公開日 平成14年3月8日 (2002.3.8)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テ-マ-ト* (参考)
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	C 4 J 0 0 2
C 0 8 G 59/68		C 0 8 G 59/68	4 J 0 0 5
65/18		65/18	4 J 0 3 6
C 0 8 K 5/00		C 0 8 K 5/00	4 J 0 4 0
5/13		5/13	5 D 0 2 9
審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-258930(P2000-258930)

(22) 出願日 平成12年8月29日 (2000.8.29)

(71) 出願人 000002886

大日本インキ化学工業株式会社

東京都板橋区坂下3丁目35番58号

(72) 発明者 伊藤 大介

埼玉県上尾市緑丘4-12-8 富吉コーポ  
205

(74) 代理人 100088764

弁理士 高橋 勝利

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 紫外線硬化型組成物及び光ディスク

(57) 【要約】

【課題】 40～60℃のような高温条件でも特性変化が少なく、長期保存が可能となるカチオン重合系紫外線硬化型組成物を提供する。

【解決手段】 (A) カチオン重合性化合物、(B) ヨードニウム系光カチオン重合開始剤、及び (C) ラジカル禁止剤又は酸化防止剤を含有する紫外線硬化型組成物。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】(A)カチオン重合性化合物、(B)ヨードニウム系光カチオン重合開始剤、及び(C)ラジカル禁止剤又は酸化防止剤を含有することを特徴とする紫外線硬化型組成物。

【請求項2】(C)ラジカル禁止剤又は酸化防止剤が、フェノール系化合物であることを特徴とする請求項1記載の紫外線硬化型組成物。

【請求項3】請求項1又は2に記載の紫外線硬化型組成物を接着剤として用いたことを特徴とする貼り合わせ型の光ディスク。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、紫外線照射により硬化する塗料、接着剤、インキ等の紫外線硬化型組成物に関する。特に、デジタルバーサタイルディスク又はデジタルビデオディスク(DVD)等の貼り合わせ型光ディスクの製造に適した接着剤組成物に関する。

【0002】

【従来の技術】J.V.CrivelloらがJournal of Radiation Curing, 4(3), 2(1977)等において芳香族ヨードニウム塩を光開始剤とする光カチオン重合を報告して以来、芳香族ヨードニウム塩を含有するカチオン重合系紫外線硬化型組成物が、例えば、特開昭63-248825号公報、特開平11-217518号公報、特開平11-315132号公報等に記載されるように、塗料、接着剤、インキ等の用途に応用されてきた。

【0003】しかしながら、芳香族ヨードニウム塩を含有する紫外線硬化型組成物は、夏期や高温地域の輸送等におけるように高い温度条件に曝されると、次第に粘度が上昇したり、ゲル化が生じる問題があった。このため、安定した品質を保持するためには、その保存や輸送において冷却装置を設けることが必要とされ、コストの上昇を招いていた。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、従来の芳香族ヨードニウム塩を含有する紫外線硬化型組成物において問題となった保存安定性の不良を组成的な面から改善し、長期間の保存に対しても特性が安定的に保持されるカチオン重合系紫外線硬化型組成物を提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、芳香族ヨードニウム塩がラジカルとの酸化還元反応によって重合開始種を発生することから、40~60℃のような高い温度条件において経時的に粘度が上昇したり、ゲル化するの、熱的に発生するラジカルと関係があると推定した。

【0006】そこで、本発明者らは、上記課題を解決するため、ラジカルを不活性化する化合物を種々検討した

結果、ラジカル重合禁止剤又は酸化防止剤を含有させることにより、粘度の上昇が少なく、長期の保存が可能になることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【0007】即ち、本発明は、(A)カチオン重合性化合物、(B)ヨードニウム系光カチオン重合開始剤、及び(C)ラジカル禁止剤又は酸化防止剤を含有することを特徴とする紫外線硬化型組成物、及びこれを接着剤として用いた貼り合わせ型の光ディスクを提供するものである。

【0008】ここで、本発明の紫外線硬化型組成物に用いるラジカル禁止剤及び酸化防止剤としては、特にフェノール系化合物であることが硬化性の面から好ましい。フェノール系のラジカル禁止剤又は酸化防止剤が特に好ましい理由は、これらの材料の塩基性が一般に小さいので、過度の重合阻害因子となって硬化不良を引き起こすことが少ないためであると考えられる。

【0009】本発明の紫外線硬化型組成物は、長期保存安定性と紫外線照射後の硬化性が良好であり、これを貼り合わせ型光ディスクの接着剤として用いることで、安定した品質の光ディスクを提供することができる。

【0010】

【発明の実施の形態】本発明に用いられる(A)カチオン重合性化合物としては、カチオン重合してポリマーを形成する化合物であれば、特に制限無く使用できるが、好適なものとしては、エポキシ基を有する化合物、オキセタン基を有する化合物、ビニルエーテル化合物等が挙げられる。

【0011】エポキシ基を有する化合物には、例えば、グリシジルエーテル型エポキシ樹脂、脂環エポキシ樹脂、ビニル基を有するオリゴマーをエポキシ化した樹脂等が挙げられる。

【0012】グリシジルエーテル型エポキシ樹脂の具体例として、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールAのアルキレンオキサイド付加体のジグリシジルエーテル、ビスフェノールFのアルキレンオキサイド付加体のジグリシジルエーテル、水素添加ビスフェノールAのアルキレンオキサイド付加体のジグリシジルエーテル、エチレングリコールジグリシジルエーテル、プロピレングリコールジグリシジルエーテル、ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ブタンジオールジグリシジルエーテル、ヘキサジオールジグリシジルエーテル、シクロヘキサジメタノールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパンジグリシジルエーテル、トリグリシジルエーテル、ペンタエリスリトールトリグリシジルエーテル、ソルビトールヘプタグリシジルエーテル、レゾルシンジグリシジルエーテル等を挙げる

ことができる。

【0013】これらエポキシ樹脂は原料であるエピクロヒドリンに起因して塩素が結合した有機分子を不純物として含有するが、光ディスク等の用途に使用する場合には塩素は高温高湿試験においてアルミニウム等、金属薄膜の腐食の原因となるために、組成物中の塩素含有量は低い方が好ましく、更に1%以下であることが特に好ましい。

【0014】グリシジルエーテル型エポキシ樹脂の市販品としては、例えば、エピクロン840、840S、850、850S、860、1050、830、705、707、720、725、N-665、EXA-7015（全塩素0.14%）（以上、大日本インキ化学工業社製）、EX-201、EX-211、EX-212、EX-216、EX-252、EX-321、EX-622、EX-611、EX-216L（全塩素0.19%）（以上、ナガセ化成社製）、SR-16H、SR-NPG、NPG-DGE低塩素品（全塩素0.91%）、SR-16HL（EX）（全塩素0.24%）、SR-16KF（全塩素0.20%）（以上、阪本薬品社製）等が入手できる。

【0015】脂環エポキシ樹脂の具体例として、3,4-エポキシシクロヘキシルメチル-3,4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレート、リモネンジエポキシド等を挙げることが出来る。

【0016】脂環エポキシ樹脂の市販品として、UVR-6105、UVR-6110、UVR-6128（以上ユニオンカーバイド社製）、セロキサイド2021、セロキサイド2081、2083、2085、3000、エポリッドGT301、GT302、GT401、GT403（以上ダイセル化学工業社製）等が入手できる。

【0017】ビニル基を有するオリゴマーをエポキシ化した樹脂としては、具体的に、環状オレフィン化合物のエポキシ化物、エポキシ化ポリブタジエン、エポキシ化ポリイソブレン、エポキシ化ブタジエン-スチレン共重合体エポキシ化イソブレン-スチレン共重合体等を挙げることができる。

【0018】ビニル基を有するオリゴマーをエポキシ化した樹脂の市販品としては、EHPE3150、エポリッドPB3600、PB4700、D100、D200、エポフレンドA1005、A1010、A1020（以上ダイセル化学工業社製）等が入手できる。

【0019】オキセタン環を有する化合物の具体例として、1,4-ビス〔(3-エチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル〕ベンゼン、1,4-ビス〔(3-メチル-3-オキセタニルメトキシ)メチル〕ベンゼン、3-メチル-3-グリシジルオキセタン、3-エチル-3-グリシジルオキセタン、3-メチル-3-ヒドロキシメチルオキセタン、3-エチル-3-ヒドロキシメチル

オキセタン等を挙げることが出来る。

【0020】オキセタン環を有する化合物の市販品としては、XDO、MOXA、EOXA、Oligo-OXT（以上東亜合成社製）等入手できる。

【0021】本発明に使用する(B)ヨードニウム系光カチオン重合開始剤は、紫外線の照射によってカチオン重合を開始する芳香族ヨードニウム塩であり、例えば、カチオン部分が、芳香族ヨードニウムであり、アニオン部分が、 $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、 $\text{SbF}_6^-$ 、 $[\text{BX}_4]^-$ （ただし、Xは少なくとも2つ以上のフッ素又はトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基）で構成されるオニウム塩が挙げることができる。

【0022】具体例としては、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ジフェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ジフェニルヨードニウムテトラフルオロボレート、ジフェニルヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムテトラフルオロボレート、ビス（ドデシルフェニル）ヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート、4-メチルフェニル-4-（1-メチルエチル）フェニルヨードニウムヘキサフルオロホスフェート、4-メチルフェニル-4-（1-メチルエチル）フェニルヨードニウムヘキサフルオロアンチモネート、4-メチルフェニル-4-（1-メチルエチル）フェニルヨードニウムテトラフルオロボレート、4-メチルフェニル-4-（1-メチルエチル）フェニルヨードニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート等が挙げられる。

【0023】ヨードニウム系光カチオン重合開始剤の市販品として、例えば、SARCATCD-1012（サートマー社製）、BBI-102、BBI-103（以上みどり化学社製）、RHODORSIL PI2074（ローディア社製）等が入手できる。

【0024】これら光カチオン重合開始剤のうち、アニオン部分が、 $[\text{BX}_4]^-$ （ただし、Xは少なくとも2つ以上のフッ素又はトリフルオロメチル基で置換されたフェニル基）で構成されるオニウム塩が、光ディスクの用途に対してはアルミニウム等の金属薄膜への腐食性が低いので、より好ましい。

【0025】この条件を満足する市販品の光カチオン重合開始剤としては、例えば、上に列挙した中では、RHODORSIL PI2074等が挙げられる。

【0026】上記光カチオン重合開始剤は、単独若しくは2種類以上を組み合わせ使用してもよい。その使用量は、特に制限がないが、経済性等の面から紫外線硬化型接着剤組成物100重量部あたり0.3~10部が好ましい。

【0027】さらに、硬化性を高める目的で、光ラジカル発生剤又は増感剤を使用しても良い。そのような材料としては、例えば、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン等のヒドロキシアセトフェノン化合物、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル等のベンゾイン化合物、ベンゾフェノン、4-フェニルベンゾフェノン、イソフタロフェノン、4-ベンゾイル-4'-メチルフェニルスルフィド等のベンゾフェノン化合物、2,4-ジエチルチオキサントン、2-イソプロピルチオキサントン、2-クロロチオキサントン等のチオキサントン化合物、2,4,6-トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキシド、ビス(2,6-ジメトキシベンゾイル)-2,4,4-トリメチルペンチルホスフィンオキシド等のアシルホスフィンオキシド化合物、ベンジルジメチルケタール、ベンジル等が挙げられる。

【0028】これら光ラジカル発生剤及び増感剤の市販品としては、例えば、イルガキュア184、イルガキュア651、イルガキュア819、ダロキュア1173 (以上、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製)、ルシリンTPO (BASF社製)、バイキュア55 (アクゾ・ノーベル社製)、カヤキュアDETX-S、カヤキュアBP-100 (日本化薬社製)、スピードキュアBMDS (ランブソン社製)等が挙げられる。

【0029】これらのうち特に、ヒドロキシアセトフェノン化合物、ベンゾフェノン化合物、チオキサントン化合物を使用すると、均一で且つ高い硬化性が得られるので好ましい。

【0030】上に挙げた光ラジカル発生剤の市販品の中では、ヒドロキシアセトフェノン化合物としてはイルガキュア184、ダロキュア1173、ベンゾフェノン化合物としては、カヤキュアBP-100、スピードキュアBMDS、チオキサントン化合物としてはカヤキュアDETX-Sがそれぞれ該当する。

【0031】(C) 光ラジカル発生剤の使用量は、(B) 光カチオン重合開始剤/(C) 光ラジカル発生剤の重量比が、0.2~1.0になるようにすることが好ましい。前記重量比が、1.0より大きいと、硬化速度の向上に十分な効果が得られず、0.2より小さくても、これ以上硬化性に対する効果はもはやなく、コストアップになるだけでなく、耐候性が悪化する場合がある。

【0032】本発明に使用する(C)ラジカル禁止剤又は酸化防止剤としては公知の化合物が使用できるが、特にフェノール系の化合物であることが好ましい。

【0033】フェノール系ラジカル禁止剤としては、例えば、ハイドロキノン、ハイドロキノンモノメチルエーテル、モノ-tert-ブチルハイドロキノン、p-tert-ブチルカテコール、2,6-ジ-tert-ブチルフェノール、2,4-ジ-tert-ブチルフェノール、2-tert-ブチル-4,6-ジメチルフェノール、2,6-

-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリ-tert-ブチルフェノール等が挙げられる。

【0034】フェノール系酸化防止剤としては、例えば、n-オクタデシル 3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、3,9-ビス(2-(3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)-プロピオニルオキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ(5・5)ウンデカン、トリエチレングリコールビス(3-(3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)、テトラキス(メチレン(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)メタン、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、2,4,6-トリ-tert-ブチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシメチルフェノール、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4-エチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(6-シクロヘキシル-4-メチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、4,4'-チオビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、2,4-ビス((オクチルチオ)メチル)-o-クレゾール、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン等が挙げられる。

【0035】フェノール系ラジカル禁止剤並びにフェノール系酸化防止剤の市販品としては、スミライザーBH-T、BP-76、MDP-S、S、BBM-S、WX-R、BP-101、GA-80 (以上住友化学社製)、アデカスタブAO-20、AO-30、AO-40、AO-50、AO-60、AO-70、AO-75、AO-80、AO-330 (以上旭電化社製)、イルガノックス1010、1035、1076、1135、1141、1330、245 (以上チバスペシャルティケミカルズ社製)等が入手できる。

【0036】また、本発明の紫外線硬化型接着剤組成物には必要であれば、本発明の効果を損なわない範囲内で、ポリオール、無機充填剤、無機イオン交換体、レベリング剤、粘度調整剤、シランカップリング剤、顔料・有機染料等の着色剤、等を併用することができる。

【0037】本発明の組成物は、塗料、接着剤、インキの用途に特に制限無く適用することが出来るが、ここでは、DVD等の貼り合わせ型光ディスクに使用方法について説明する。

【0038】本発明の組成物は、基板上に均一な厚みの塗膜をスピンコート法やスクリーン印刷法等を用いて形成した後、紫外線を照射し、もう1枚の基板を貼り合わせて、目的の光ディスクを得ることができる。また、接着剤層に気泡が残ることを防止する目的で、以下のよう

な方法で目的の光ディスクを得ることができる。

【0039】(1) 組成物を滴下しながら紫外線を照射し、基板上にリング状に塗布した後、もう1枚の基板を重ね合わせ、スピナー等高速回転することにより組成物を展延して、貼り合わせる方法。

【0040】(2) 組成物を滴下しながら紫外線を照射し、2枚の基板上にリング状に塗布した後、滴下した面同士を対向させ重ね合わせ、自重又は加圧することにより組成物を展延して、貼り合わせる方法。

【0041】(3) 組成物を基板上にリング状に滴下した後、紫外線を照射し、もう1枚の基板を重ね合わせ、スピナー等高速回転することにより組成物を展延して、貼り合わせる方法。

【0042】(4) 組成物を2枚の基板上にリング状に滴下した後、2枚の基板に紫外線を照射し、滴下した面同士を対向させ重ね合わせ、自重又は加圧することにより組成物を展延して、貼り合わせる方法。

【0043】本発明の組成物を硬化させるために用いる紫外線照射の方法としては、一般的な連続光照射以外に、閃光照射方式を使用してもよい。ランプは、メタルハライドランプ、高圧水銀ランプ、超高圧水銀ランプ、キセノンランプ等が使用できる。紫外線の照射量は、組成物を十分に硬化させるために、 $0.05 \text{ J/cm}^2$ 以上が好ましい。

【0044】

【実施例】次に、実施例を挙げて本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。尚、以下実施例中「部」は「質量部」を表す。

【0045】実施例1

水添ビスフェノールA型エポキシ樹脂(大日本インキ化学工業社製EXA-7015)25部、固形ビスフェノールA型エポキシ樹脂(大日本インキ化学工業社製エポクロン1050)20部、1,6-ヘキサジオールジグリシジルエーテル(阪本薬品社製SR-16HL)5部、フェノール系酸化防止剤アデカスタブAO-80(旭電化社製)0.5部を90℃で3時間混合溶解した後、60℃まで温度を下げ、ヨードニウム系光カチオン\*

\*重合開始剤RHODORSILPI2074(ローディア社製)0.5部、光ラジカル発生剤イルガキュア184(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製)0.5部、レベリング剤L-7604(日本ユニカー社製)0.2部を加え、1時間混合溶解し、紫外線硬化型組成物を調製した。

【0046】実施例2

実施例1において、フェノール系酸化防止剤としてアデカスタブAO-80を0.5部の代わりに同化合物1部を用いた以外は、実施例1と同様にして、紫外線硬化型組成物を調製した。

【0047】実施例3

実施例1において、フェノール系酸化防止剤としてアデカスタブAO-80の代わりにスミライザBHT(住友化学社製)0.5部を用いた以外は、実施例1と同様にして、紫外線硬化型組成物を調製した。

【0048】実施例4

実施例1において、フェノール系酸化防止剤としてアデカスタブAO-80の代わりにイルガノックス1010(チバスペシャルティケミカルズ社製)0.5部を用いた以外は、実施例1と同様にして、紫外線硬化型組成物を調製した。

【0049】比較例1

実施例1において、フェノール系酸化防止剤アデカスタブを用いない以外は、実施例1と同様にして、淡黄色透明の紫外線硬化型組成物を調製した。

【0050】実施例1～4及び比較例1で得た組成物を用いて、下記方法により保存安定性試験を行った。その試験結果を表1に示す。

【0051】保存安定性試験

各組成物の25℃における粘度をJIS K-6901に準じてBM型粘度計により測定した。次に、プラスチック容器に入れた各組成物を温度60℃の恒温槽に保存し、2、4、14日の各日数経過後に取り出し、前記と同様に25℃における粘度を測定した。

【0052】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1
粘度 (mPa・s/25℃)	初期	600	620	610	614	610
	60℃2日	600	620	620	614	740
	60℃4日	600	620	620	614	ゲル化
	60℃14日	610	640	630	660	

【0053】表1から明らかなように、実施例1～4の組成物は、60℃の保存条件でも粘度の変化が小さいことが分かる。一方、比較例1の組成物は、60℃では粘

度上昇が大きく、4日ではゲル化してしまい、接着剤として使用できない状態になった。

【0054】

【発明の効果】本発明の紫外線硬化型組成物は、高温の保存条件でも特性変化が少ないので、夏期や高温地域における輸送や保存においても、温度条件を管理したり、コストのかかる冷却装置を使用する必要がなくなる。ま\*

また、DVD等の貼り合わせ型光ディスクの接着剤として用いることで、安定した品質の光ディスクを提供することができる。

フロントページの続き

(51)Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	ターマコード (参考)
C 0 8 L 71/02		C 0 8 L 71/02	5 D 1 2 1
C 0 9 J 129/10		C 0 9 J 129/10	
163/00		163/00	
171/02		171/02	
201/00		201/00	
G 1 1 B 7/24	5 4 1	G 1 1 B 7/24	5 4 1 K
			5 4 1 M
7/26	5 3 1	7/26	5 3 1

F ターム (参考) 4J002 CD001 CD011 CD021 CD051  
 CD181 EE057 EJ027 EJ067  
 EV077 EW176 EY016 FD077  
 FD206  
 4J005 AA07 BB01 BB02  
 4J036 AB01 AB02 AB03 AB07 AB08  
 AC02 AC08 AD08 AF06 AF08  
 AF11 AJ15 AK02 AK03 FA10  
 GA24 HA02 JA15  
 4J040 DD051 EC001 EE021 JB07  
 KA13 KA19 KA27 MA10 MB05  
 MB09 NA21  
 5D029 RA30 RA33  
 5D121 AA07 EE28 FF02 FF03 FF13  
 GG02

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-069269

(43)Date of publication of application : 08.03.2002

---

(51)Int.Cl. C08L 63/00  
C08G 59/68  
C08G 65/18  
C08K 5/00  
C08K 5/13  
C08L 71/02  
C09J129/10  
C09J163/00  
C09J171/02  
C09J201/00  
G11B 7/24  
G11B 7/26

---

(21)Application number : 2000-258930

(71)Applicant : DAINIPPON INK &amp; CHEM INC

(22)Date of filing : 29.08.2000

(72)Inventor : ITO DAISUKE

---

(54) ULTRAVIOLET-CURABLE COMPOSITION AND OPTICAL DISC

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an ultraviolet-curable cation polymerizable composition which shows variation characteristics even under a high temperature of 40-60° C and permits long-term preservation.

SOLUTION: The ultraviolet curing composition comprises a cationically polymerizable compound (A), an iodonium-based photocationic polymerization initiator (B), and a radical inhibitor or an antioxidant (C).

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]



## \* NOTICES \*

JP0 and IMP11 are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] (A) The ultraviolet curing setup-of-tooling product characterized by containing a cationic polymerization nature compound, (B) iodonium system light cationic initiator and (C) radical inhibitor, or an antioxidant.

[Claim 2] (C) The ultraviolet curing setup-of-tooling product according to claim 1 with which radical inhibitor or an antioxidant is characterized by being a phenol system compound.

[Claim 3] The optical disk of the lamination mold characterized by using an ultraviolet curing setup-of-tooling product according to claim 1 or 2 as adhesives.

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

1. PO and IP11 are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to ultraviolet curing setup-of-tooling products, such as a coating hardened by UV irradiation, adhesives, and ink. It is related with the adhesives constituent which fitted manufacture of lamination mold optical disks, such as a digital versatile disc or a digital videodisc (DVD), especially.

[0002]

[Description of the Prior Art] J. Since the optical cationic polymerization to which V.Grivello and others makes aromatic series iodonium salt a photoinitiator in Journal of Radiation Curing, 4 (3), 2 (1977), etc. was reported, the cationic polymerization system ultraviolet curing setup-of-tooling product containing aromatic series iodonium salt has been applied to the application of a coating, adhesives, ink, etc. so that it may be indicated by JP.63-248825.A, JP.11-217518.A, JP.11-315132.A, etc.

[0003] However, when the ultraviolet curing setup-of-tooling product containing aromatic series iodonium salt was put to high temperature conditions as in a summer, transportation of an elevated-temperature area, etc., viscosity rose gradually and it had the problem which gelation produces. For this reason, in order to hold the stable quality, to form a cooling system in that preservation and transportation was needed, and the rise of cost was caused.

[0004]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] The technical problem of this invention improves from a presentation-side the defect of the preservation stability it was unstable on a problem in the ultraviolet curing mold presentation section containing the conventional aromatic series iodonium salt, and is to offer the cationic polymerization system ultraviolet curing setup-of-tooling product with which a property is stably held also to prolonged preservation.

[0005]

[Means for Solving the Problem] Since aromatic series iodonium salt generated the polymerization initiation kind by the oxidation reduction reaction with a radical, this invention persons presumed that viscosity rose with time or gelling had the radical and relation which are generated thermally in high temperature conditions like 40-60 degrees C.

[0006] Then, this invention persons came to complete a header and this invention for there being few rises of viscosity and long-term preservation being attained by making radical polymerization inhibitor or an antioxidant contain, as a result of examining various compounds which inactivate a radical, in order to solve the above-mentioned technical problem.

[0007] That is, the optical disk of the ultraviolet curing setup-of-tooling product characterized by this invention containing (A) cationic polymerization nature compound, (B) iodonium system light cationic initiator and (C) radical-inhibitor, or an antioxidant and the lamination mold using this as adhesives is offered.

[0008] Here, especially as the radical inhibitor used for the ultraviolet curing setup-of-tooling product of this invention, and an antioxidant, it is desirable from the field of hardenability that it is a phenol system compound. It is thought that the reason why the radical inhibitor or the antioxidant of a phenol system is especially desirable is because it is rare to become too much

[http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran\\_web.cgi.ejia](http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejia)

2007/01/24

[0020] As a commercial item of the compound which has an oxetane ring, XDO, MOXA, EOXA, Oligo-OXT (above Toogosei make), etc. can come to hand.

[0021] It is the aromatic series iodonium salt which starts cationic polymerization by the exposure of ultraviolet rays, for example, a cation part is aromatic series iodonium, and the onium salt by which an anion part is constituted from BF<sub>4</sub><sup>-</sup>, PF<sub>6</sub><sup>-</sup>, SbF<sub>6</sub><sup>-</sup>, and [BX<sub>4</sub>]<sup>-</sup> (however, phenyl group by which X was permuted by at least two or more fluorines or trifluoromethyl radicals) can mention (B) iodonium system light cationic initiator used for this invention.

[0022] As an example, diphenyliodonium tetrafluoroborate, Diphenyliodonium tetrakis hexafluoroantimonate, diphenyliodonium tetrafluoroborate, Diphenyliodonium tetrakis (pentafluorophenyl) borate, Bis(dodecyl phenyl) iodonium hexafluorophosphate, Bis(dodecyl phenyl) iodonium hexafluoroantimonate, Bis(dodecyl phenyl) iodonium tetrafluoroborate, bis (dodecyl phenyl) iodonium tetrakis (pentafluorophenyl) borate, 4-methylphenyl-4-(1-methylethyl) phenyliodonium hexafluorophosphate, 4-methylphenyl-4-(1-methylethyl) phenyliodonium tetrafluoroborate, 4-methylphenyl-4-(1-methylethyl) phenyliodonium tetrakis (pentafluorophenyl) borate, etc. are mentioned.

[0023] As a commercial item of an iodonium system light cationic initiator, they are SARCACD-1012 (Sartomer make), BBI-102, BBI-103 (above green chemistry company make), and RHODORSIL PI2074 (product made from low DIA) etc. can come to hand.

[0024] Since corrosive [to metal thin films, such as aluminum, ] is low to the application of an optical disk, the onium salt by which an anion part is constituted from [BX<sub>4</sub>]<sup>-</sup> (however, phenyl group by which X was permuted by at least two or more fluorines or trifluoromethyl radicals) among these light cationic initiators is more desirable.

[0025] As an optical cationic initiator of a commercial item which satisfies this condition, it is RHODORSIL at in having enumerated upwards, for example, PI2074 grade is mentioned.

[0026] The above-mentioned optical cationic initiator may be used combining independent or two kinds or more. Although especially the amount used does not have a limit, its 0.3 to 10 section is desirable per ultraviolet curing mold adhesives constituent 100 weight section from fields, such as economical efficiency.

[0027] Furthermore, an optical radical generating agent or a sensitizer may be used in order to raise hardenability. As such an ingredient, it is 2-hydroxy, for example, -2-methyl-1-phenyl propane-1-ON, Hydroxy acetophenone compounds, such as 1-hydroxy cyclohexyl phenyl ketone, Benzoin compounds, such as benzoin ethyl ether and benzoin isobutyl ether, A benzophenone, 4-phenylbenzo phenon, isophthalalphenone, Benzophenone compounds, such as a 4-benzoyl-4-methylphenyl sulfide, 2, 4-diethyl thioxan ton, 2-isopropyl thioxan ton, Thio KIOSANTON compounds, such as 2-chloro thioxan ton, 2 and 4, 6-trimethyl benzoyl diphenyl phosphine oxide, Screw (2, 6-dimethoxybenzoyl) - Acyl phosphine oxide compounds, such as 2, 4, and 4 trimethyl pentyl phosphine oxide, benzyl dimethyl ketal, benzyl, etc. are mentioned.

[0028] As a commercial item of these light radical generating agent and a sensitizer, the IRUGA cure 184, the IRUGA cure 851, the IRUGA cure 819, DAROKYUA 1173 (above, Ciba Specialty Chemicals make), RUSHREN TPO (BASF A.G. make), Vicure 55 (made in Akzo Nobel), kays cure DETX-S, kays cure BP-100 (Nippon Kayaku Co., Ltd. make), the speed cure BMDS (product made from run BUSON), etc. are mentioned, for example.

[0029] If a hydroxy acetophenone compound, a benzophenone compound, and a thio KIOSANTON compound are used especially among these, since uniform and high hardenability will be acquired, it is desirable.

[0030] In the commercial item of the optical radical generating agent mentioned above, kays cure DETX-S corresponds as kays cure BP-100, the speed cure BMDS, and a thio KIOSANTON compound as the IRUGA cure 184, DAROKYUA 1173, and a benzophenone compound as a hydroxy acetophenone compound, respectively.

[0031] (C) As for the amount of the optical radical generating agent used, it is desirable to make the weight ratio of (B) light cationic initiator / (C) light radical generating agent set to 0.2-10. If said weight ratio is larger than 10, even if sufficient effectiveness for improvement in a cure rate is not acquired but it is smaller than 0.2, it not only becomes a cost rise, but there is

[http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran\\_web.cgi.ejia](http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejia)

2007/01/24

polymerization inhibitor and to cause poor hardening since the basicity of these ingredients is generally small.

[0009] The ultraviolet curing setup-of-tooling product of this invention has mothball stability and the good hardenability after UV irradiation, and can offer the optical disk of the stable quality by using this as adhesives of a lamination mold optical disk.

[0010]

[Embodiment of the Invention] Although it can be especially used without a limit if it is the compound which carries out cationic polymerization and forms a polymer as a (A) cationic polymerization nature compound used for this invention, as a suitable thing, the compound which has an epoxy group, the compound which has an oxetane radical, a vinyl ether compound, etc. are mentioned.

[0011] For example, a glycidyl ether mold epoxy resin, an alicyclic epoxy resin, the resin that carried out epoxidation of the oligomer which has a vinyl group are mentioned to the compound which has an epoxy group.

[0012] As an example of a glycidyl ether mold epoxy resin, the bisphenol A mold epoxy resin, A bisphenol female mold epoxy resin, a phenol novolak mold epoxy resin, A cresol novolak mold epoxy resin, a hydrogenation bisphenol A mold epoxy resin, The diglycidyl ether of the alkylene oxide adduct of bisphenol A, The diglycidyl ether of the alkylene oxide adduct of Bisphenol F, The diglycidyl ether of the alkylene oxide adduct of hydrogenation bisphenol A, Ethylene glycol diglycidyl ether, propylene glycol diglycidyl ether, Neopentyl glycol diglycidyl ether, butanediol diglycidyl ether, Hexanediol diglycidyl ether, cyclohexane dimethanol diglycidyl ether, Propylene glycol diglycidyl ether, a TORMECHI roll pro pansy, and/or triglycidyl ether, Pen TAERSURITURITURI and/or tetraglycidyl ether, and sorbitol hepta-\*\*\*/or hexa glycidyl ether, resorcinol diglycidyl ether, etc. can be mentioned.

[0013] Although the organic molecule which these epoxy resins originated in the epichlorohydrin which is a raw material, and chlorine combined is contained as an impurity, when using it for the application of an optical disk etc., since it becomes the cause of the corrosion of metal thin films, such as aluminum, in a high-humidity/temperature trial, the lower one of the chlorine content in a constituent is desirable, and it is desirable [chlorine] that it is especially 1 more% or less.

[0014] As a commercial item of a glycidyl ether mold epoxy resin For example, Epilcon 840, 840S, 850, 850S, 860, 1050, 830, 705, 707, 720, and 725, N-665, EXA-7015 (0.14% of all chlorine) (above) The Dainippon Ink & Chemicals, Inc. make, EX-211, EX-212, EX-216, EX-252, EX-321, EX-622, EX-611, EX-216L (0.19% of all chlorine) (above) Made in Nagase Brothers Chemicals, SR-16H, SR-NPG, a NPG-DGE low chlorine article (0.91% of all chlorine), (0.24% of all SR-16HL(EX) chlorine) SR-16KF (0.20% of all chlorine) (above, the Sakamoto chemical company make), etc. can come to hand.

[0015] As an example of an alicyclic epoxy resin, 3, 4-epoxycyclohexyl methyl -3, 4-epoxycyclohexyl carboxylate, limonene dioxide, etc. can be mentioned.

[0016] As a commercial item of an alicyclic epoxy resin, UVR-6105, UVR-6100, UVR-6128 (above made in Union Carbide), the SEROKI side 2021, the SEROKI sides 2081, 2083, 2085, and 3000, EPOLEAD GT301, GT302, GT401, and GT403 (above Daicel Chemical Industries, Ltd. make), etc. can come to hand.

[0017] As resin which carried out epoxidation of the oligomer which has a vinyl group, an epoxidation object [of an annular olefin compound], epoxidation polybutadiene, epoxidation polyisoprene, and epoxidation styrene-butadiene-rubber copolymer epoxidation isoprene-styrene copolymer etc. can be mentioned concretely.

[0018] As a commercial item of the resin which carried out epoxidation of the oligomer which has a vinyl group, EHPE3150, EPOLEAD PB3600, PB4700, D100, and D200, the EPO friends A1005, A1010, and A1020 (above Daicel Chemical Industries, Ltd. make), etc. can come to hand.

[0019] As an example of a compound of having an oxetane ring, 1 and 4-bis(3-ethyl-3-oxiseta nil methoxy)methyl benzene, 1, and 4-bis(3-methyl-3-oxiseta nil methoxy)methyl benzene, 3-methyl-3-glycidyl oxetane, 3-ethyl-3-glycidyl oxetane, 3-methyl-3-hydroxymethyloxetane, 3-ethyl-3-hydroxymethyloxetane, etc. can be mentioned.

[http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran\\_web.cgi.ejia](http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejia)

2007/01/24

already no effectiveness over hardenability more than this, and weatherability may get worse.

[0032] Although a compound well-known as (C) radical inhibitor used for this invention or an antioxidant can be used, it is desirable that it is especially the compound of a phenol system.

[0033] As phenol system radical inhibitor, hydroquinone, hydroquinone monomethyl ether, Monod t-butyl hydroquinone, p-t-butyl catechol, 2, 6-G-t-butylphenol, 2, 4-G-t-butylphenol, 2-t-butyl-4, 6-dimethylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-methylphenol, 2 and 4, and 6-tree t-butylphenol etc. is mentioned, for example.

[0034] As a phenolic antioxidant, it is n-octadecyl, for example, 3-(3, 5-G-t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate, 3 and 9-screw (2-(3-t-butyl-4-hydroxy-5-methylphenyl) propionyloxy -1, 1-dimethyl ethyl)-2, 4 and 8, and 10-tetraoxaspiro (5-5) undecane -) A triethylene glycol screw (3-(3-t-butyl-5-methyl-4-hydroxyphenyl) propionate), Tetrakis (methylene (3, 5-G-t-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate) methane, 2,6-di-t-butyl-4-methylphenol, 2,6-di-t-butyl-4-ethylphenol, 2, 4, 6-tree t-butylphenol, 2, a 6-G-t-butyl-4-hydroxymethyl phenol, 2 and 2'-methylenebis (4-methyl-6-t-butylphenol), 2 and 2'-methylenebis (4-ethyl-6-t-butylphenol), 2 and 2'-methylenebis (6-cyclohexyl-4-methyl phenol), A -methylenebis (4, 6-G-t-butylphenol), and 2'-2-ethylidene screw (4, 6-G-t-butylphenol), -methylenebis (2, 6-G-t-butylphenol), and 4 and 4', 4'-butylenediene (3-methyl-6-t-butylphenol), A 4 and 4'-thio screw (3-methyl-6-t-butylphenol), 2-bis(octylthio) (methyl) -o-cresol, 2 and 2'-methylenebis (4-methyl-6-t-butylphenol), 1 and 3, 5-trimethyl -2, 4, and 6-tris (3, 5-G-t-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene etc. is mentioned.

[0035] In a phenol system radical inhibitor list, as a commercial item of a phenolic antioxidant SUMIRAZA BHT, BP-76, MDP-S, S, BBM-S, WX-R, BP-101, GA-80 (above Sumitomo Chemical Co., Ltd. make), ADEKA stub AO-20, AO-30, AO-40, AO-50, AO-60, AO-70, AO-75, AO-80, AO-330 (above the Asahi electrification company make), IRUGA NOx 1010, 1035, 1076, 1135, 1141, 1330, and 245 (above Ciba Specialty Chemicals make) etc. can come to hand.

[0036] Moreover, if required for the ultraviolet curing mold adhesives constituent of this invention, coloring agents, such as polyol, an inorganic bulking agent, an inorganic ion exchanger, a leveling agent, a viscosity controlling agent, a silane coupling agent, and a pigment, organic dye, etc. can be used together within limits which do not spoil the effectiveness of this invention.

[0037] Although the constituent of this invention can be applied that there is especially no limit in the application of a coating, adhesives, and ink, it explains how to use it for lamination mold optical disks, such as DVD, here.

[0038] After the constituent of this invention forms the paint film of uniform thickness using a spin coat method, screen printing, etc. on a substrate, it irradiates ultraviolet rays, sticks one more substrate, and can obtain the target optical disk. Moreover, the target optical disk can be obtained by the following approaches in order to prevent that air bubbles remain in an adhesives layer.

[0039] (1) How to spread a constituent and stick it by carrying out [spin coater / superposition, ] high-speed rotation of the one more substrate, after irradiating ultraviolet rays and applying in the shape of a ring on a substrate, while a constituent is dropped.

[0040] (2) How to make the dropped fields counter, spread a constituent superposition end by it being cautious or pressurizing, and stick, after irradiating ultraviolet rays and applying in the shape of a ring on two substrates, while a constituent is dropped.

[0041] (3) How to irradiate ultraviolet rays, spread a constituent by carrying out [spin coater / superposition, ] high-speed rotation of the one more substrate, and stick, after a constituent is dropped in the shape of a ring on a substrate.

[0042] (4) How to make the fields which irradiated ultraviolet rays and were dropped counter two substrates, spread a constituent superposition and by it being cautious or pressurizing, and stick, after a constituent is dropped in the shape of a ring on two substrates.

[0043] As the approach of UV irradiation used in order to stiffen the constituent of this invention, a flash exposure method may be used in addition to a general continuation light exposure. A metal halide lamp, a high-pressure mercury lamp, an extra-high pressure mercury lamp, a xenon lamp, etc. can be used for a lamp. Since the exposure of ultraviolet rays fully stiffens a constituent, two or more 0.05 J/cm is desirable.

[http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran\\_web.cgi.ejia](http://www4.ipdl.ncipi.go.jp/cgi-bin/tran_web.cgi.ejia)

2007/01/24

[0044]

[Example] Next, although an example is given and this invention is further explained to a detail, this invention is not limited to these examples. In addition, the "section" expresses the "mass section" among an example below.

[0045] The example 1 hydrogenation bisphenol A mold epoxy resin (EKA[ by Dainippon Ink & Chemicals, Inc.] 7015) 25 section, The solid bisphenol A mold epoxy resin (Epison 1050 by Dainippon Ink & Chemicals, Inc.) 20 section, 1, the 8-hexanediol-5glycidyl-ether (SR[ by the Sakamoto chemical company ]- 18 HL) 55 section, After carrying out the mixed dissolution of the phenolic antioxidant ADEKA stub AO-80 (Asahi electrification company make) 0.5 section at 90 degrees C for 3 hours, Temperature is lowered to 60 degrees C. The iodonium system light cationic initiator RHODORSILPI2074 (product made from low DIA) 0.5 section, The optical radical generating agent IRUGA cure 184 (Ciba Specialty Chemicals make) 0.5 section and the leveling agent L-7604 (Nippon Unicar make) 0.2 section were added, the mixed dissolution was carried out for 1 hour, and the ultraviolet curing setup-of-tooling product was prepared.

[0046] In example 2 example 1, the ultraviolet curing setup-of-tooling product was prepared like the example 1 except having used the said compound 1 section for ADEKA stub AO-80 instead of the 0.5 sections as a phenolic antioxidant.

[0047] In example 3 example 1, the ultraviolet curing setup-of-tooling product was prepared like the example 1 except having used the Sumi Liza BHT(Sumitomo Chemical Co., Ltd. make)0.5 section instead of ADEKA stub AO-80 as a phenolic antioxidant.

[0048] In example 4 example 1, the ultraviolet curing setup-of-tooling product was prepared like the example 1 except having used the IRUGA NOx 1010 (Ciba Specialty Chemicals make) 0.5 section instead of ADEKA stub AO-80 as a phenolic antioxidant.

[0049] In example of comparison 1 example 1, the ultraviolet curing setup-of-tooling product of light yellow transparency was prepared like the example 1 except not using a phenolic antioxidant ADEKA stub.

[0050] The preservation stability test was performed by the following approach using the constituent obtained in examples 1-4 and the example 1 of a comparison. The test result is shown in Table 1.

[0051] It is JIS about the viscosity in 25 degrees C of a preservation stability test class product. According to K-6901, it measured with BM mold viscometer. Next, the class product put into the plastic envelope was saved at the thermostat with a temperature of 60 degrees C, it took out after each days progress on 2, 4, and the 14th, and the viscosity in 25 degrees C was measured like the above.

[0052]

[Table 1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1
粘度 (Pa・s)	初期	600	620	610	614	610
	2日後	600	620	620	614	740
	4日後	600	620	620	614	ゲル化
	14日後	610	640	630	660	

[0053] The constituent of examples 1-4 is understood that change of viscosity is small also on 60-degree C preservation conditions so that clearly from Table 1. On the other hand, the constituent of the example 1 of a comparison had the large viscosity rise at 60 degrees C, and changed into the condition that it will gel in four days and cannot be used as adhesives.

[0054]

[Effect of the Invention] Since there is little property change, it becomes unnecessary to use for the ultraviolet curing setup-of-tooling product of this invention the cooling system which

manages temperature conditions or cost requires also in the transportation and preservation in a summer or an elevated-temperature area also on hot preservation conditions. Moreover, the optical disk of the stable quality can be offered by using as adhesives of lamination mold optical disks, such as DVD.

[Translation done.]

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**